

BEST AVAILABLE COPY
PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-302313

(43)Date of publication of application : 25.11.1997

(51)Int.Cl.

C09J 7/02
C09J 7/02
C09J 7/02
C09J 7/02
C09J 7/02
C09J 7/02
C09J163/00
H05K 3/46

(21)Application number : 08-114446

(71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 09.05.1996

(72)Inventor : INADA TEIICHI

NAKASO AKISHI

TAKAHASHI ATSUSHI

ARIGA SHIGEHARU

OTSUKA KAZUHISA

YAMAMOTO KAZUNORI

MADARAME TAKESHI

TSURU YOSHIYUKI

SHIMIZU HIROSHI

OGAWA NOBUYUKI

(54) METALLIC FOIL WITH ADHESIVE, BONDING SHEET AND MULTILAYERED WIRING BOARD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To prepare a metallic foil with an adhesive, having a moderate fluidity, excellent circuit filling properties and adhesion and a high elastic modulus at high temperatures and excellent in wire bonding properties, a bonding sheet and a multilayered wiring board.

SOLUTION: This metallic foil with an adhesive or bonding sheet is obtained by forming an adhesive, containing 100 pts.wt. total amount of a liquid epoxy resin having $\geq 130^{\circ}\text{C}$ glass transition temperature (T_g) at the time of curing and its curing agent, 20-100 pts.wt. high-molecular weight resin having ≥ 30000 weight-average molecular weight, 0.1-10 pts.wt. curing accelerator, 0.1-10 pts.wt. coupling agent and an inorganic filler having 5-9m²/g BET surface

area in a volume of 15-100 pts.vol. based on 100 pts.vol. resin and having $\geq 100\text{MPa}$ elastic modulus at 130°C when curing the adhesive in a semicured state on a metallic foil or a sheet. A multilayered wiring board is prepared by using the metallic foil or bonding sheet.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 30.11.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3411748

[Date of registration] 20.03.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

DERWENT-ACC-NO: 1998-059465

DERWENT-WEEK: 200343

COPYRIGHT 2007 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Adhesive stuck metal foil and adhesive sheet and
multilayered wiring board- consists of epoxy resin and
its hardening agent

PATENT-ASSIGNEE: HITACHI CHEM CO LTD[HTB]

PRIORITY-DATA: 1996JP-0114446 (May 9, 1996)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAINIPC
JP 3411748 B2	June 3, 2003	N/A	008	C09J 007/02
<u>JP 09302313 A</u>	November 25, 1997	N/A	009	C09J 007/02

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 3411748B2	N/A	1996JP0114446	May 9, 1996
JP 3411748B2	Previous Publ.	JP 9302313	N/A
JP 09302313A	N/A	1996JP0114446	May 9, 1996

INT-CL (IPC): C09J007/02, C09J163/00, H05K003/46

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 09302313A

BASIC-ABSTRACT:

SEMI-CURED
An adhesive consists of: (a) a 100 pts.wt.-liq. epoxy resin having a glass transition temp. of 130 deg. C or more in hardening, and its hardening agent; (b) a 20-100 pts.wt.-high macromolecular wt.-resin having a wt.-average molecular wt. of 30,000 or more; (c) a 0.1-10 pts.wt.-coupling agent; (d) a 0.1-10 pts.wt.-hardening accelerator; and (e) an inorganic filler having a Brunauer-Emmett-Teller specific surface of 5-9 m²/g, 15-100 volume pt. per 100 volume pt. of the (a), (b) resins. The adhesive has an elastic modulus at 130 deg. C in hardening of 100 MPa or more. The adhesive is provided on metal foil to form a semihardened state.

Also claimed is that an adhesivesheet is formed by providing the adhesive on the adhesive sheet to form a semihardened state.

Also claimed is that a multilayerd wiring board is formed by: (a) superimposing the adhesive surface of the metal foil on a previously circuitprovided circuit board; (b) heating and pressing the metal foil and the circuit board for integration; (c) forming the circuits.

ADVANTAGE - The adhesive-stuck metal foil, the adhesive sheet, and the multilayered wiring board have superior wire bonding, flexibility, and circuit filling.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/1

TITLE-TERMS: ADHESIVE STICK METAL FOIL ADHESIVE SHEET MULTILAYER WIRE BOARD
CONSIST EPOXY RESIN HARDEN AGENT

DERWENT-CLASS: A85 G03 L03 U14 V04

CPI-CODES: A05-A01E3; A07-A03; A07-A04A; A08-D01; A08-M01; A08-R01; A12-A05C;
A12-E07A; G03-B02C; G03-B02E2; L03-H04E3;

EPI-CODES: U14-H03B1; V04-R05A;

AN 1997:759844 CAPLUS
 DN 128:62522
 ED Entered STN: 05 Dec 1997
 TI Metal foils with adhesives and adhesive sheets and multilayer circuit boards
 IN Inada, Sadaichi; Nakaso, Akishi; Takahashi, Atsushi; Ariie, Shigeharu; Otsuka, Kazuhisa; Yamamoto, Kazunori; Madarame, Takeshi; Tsuru, Yoshiyuki; Shimizu, Hiroshi; Ogawa, Nobuyuki
 PA Hitachi Chemical Co., Ltd., Japan
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 9 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 IC ICM C09J007-02
 ICS C09J007-02; C09J163-00; H05K003-46
 CC 38-3 (Plastics Fabrication and Uses)
 Section cross-reference(s): 76
 FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 09302313	A	19971125	JP 1996-114446	19960509 <--
	JP 3411748	B2	20030603		
PRAI	JP 1996-114446		19960509		

CLASS

PATENT NO.	CLASS	PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES
JP 09302313	ICM	C09J007-02
	ICS	C09J007-02; C09J163-00; H05K003-46
	IPCI	C09J0007-02 [ICM,6]; C09J0007-02 [ICS,6]; C09J0163-00 [ICS,6]; H05K0003-46 [ICS,6]

AB Adhesives contain 100 parts liquid epoxy resins having cured glass transition temperature >130° and hardening agents, 20-100 parts polymers having weight-average mol. weight >30,000, 0.1-10 parts coupling agents, 0.1-10 parts hardening accelerators, 15-100 volume parts inorg. fillers having BET sp. surface area 5-9 m²/g per 100 volume parts resins, and the adhesives have cured modulus of elasticity >100 MPa at 130°. Thus, an adhesive contained Epikote 828 30, ESCN 001 10, Phenolite LF 2882 25, Pheno Tohto YP 50 10, HTR-860P-3 30, Curezol 2PZ-CN 0.5, NUC A-187 0.5, AL-160-SG-1 (alumina) 150 parts, and MEK.

ST epoxy adhesive copper foil; circuit board epoxy adhesive; coupling agent epoxy adhesive; filler alumina epoxy adhesive

IT Adhesives

Coupling agents

Crosslinking catalysts

Fillers

Printed circuit boards

(adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT Epoxy resins, uses

RL: POF (Polymer in formulation); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)

(adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT Acrylic rubber

RL: POF (Polymer in formulation); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)

(epoxy-containing, HTR-860P-3; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT Crosslinking agents

(novolak resins; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT Phenolic resins, uses

RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)
 (novolak, crosslinking agents; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT Epoxy resins, uses
 RL: POF (Polymer in formulation); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)
 (phenolic, novolak; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 1344-28-1, Alumina, uses
 RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)
 (AL 160SG1; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 23996-12-5, Curezol 2PZ-CN
 RL: CAT (Catalyst use); USES (Uses)
 (Curezol 2PZ-CN; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 25068-38-6, Epikote 828
 RL: POF (Polymer in formulation); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)
 (Epikote 828; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 2530-83-8, NUC A-187
 RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)
 (NUC A-187; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 1319-77-3D, Cresol, novolak epoxy resins 183748-49-4, ESCN 001
 RL: POF (Polymer in formulation); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)
 (adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 7440-50-8, Copper, uses
 RL: TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)
 (adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

IT 80-05-7D, novolak resins 183748-53-0, Phenolite LF 2882
 RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)
 (crosslinking agents; adhesives containing epoxy resins and crosslinking agents and coupling agents and fillers for metal foils and multilayer circuit boards)

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the multilayer-interconnection plate which used a metallic foil with adhesives, an adhesion sheet, and them.

[0002]

[Description of the Prior Art] Usually, in order to carry out densification of the printed wired board, generally the approach of increasing the number of wiring layers is taken, but if the number of wiring layers is increased, the catching hole for the electrical installation between each class will increase inevitably. Since the area by the through hole increased and that part that increased, and the area which forms wiring decreased when the through hole increased, since the through hole was conventionally used for this interlayer connection, the problem that densification could not be carried out was considering the increment in the number of wiring layers.

[0003] Then, the method of making connection between layers only in the part which needs electrical installation is developed, and there are some which prepared the so-called interstitial via holes (IVH), such as a through hole of a inner layer and a Sir face beer hall which connects an outer layer and a inner layer, in the multilayer printed wiring board. Although this multilayer printed wiring board containing IVH has a merit, like the improvement in electrical characteristics and the wire length whose wiring degree of freedom it is effective in densification, and also improves can be shortened, since a production process becomes complicated, while simplifying a production process and making it low cost, by the conventional approach, the method of aiming at the further densification is proposed. As such a thing, the adhesive coated surface of a metallic foil with adhesives is piled up with the circuit plate which carried out circuit processing beforehand, heating application of pressure is carried out, laminating unification is carried out and there is a multilayer-interconnection plate which prepared IVH and a through hole by drilling or hole processing by the laser beam if needed. Moreover, a through hole is made in a metallic foil with adhesives, the adhesive coated surface is piled up with the circuit plate which carried out circuit processing beforehand, heating application of pressure is carried out, and there is a multilayer-interconnection plate which carries out laminating unification.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] It is required that it should rank with the densification of wiring for the purpose of the miniaturization of a substrate, and densification chip mounting should have become important, should arrange a bare chip on a substrate, wirebonding of the wiring should be carried out to a bare chip, and connection should be aimed at in recent years. The pull reinforcement of the point and wire which can shorten the time amount which performs wirebonding as temperature on the front face of a substrate at the time of performing wirebonding is high, and it is made desirable from the point that dispersion in strong becomes small to be 130 degrees C or more. Since a surface layer was a layer which does not contain glass fabrics, the multilayer-interconnection plate multilayered in the layer which does not contain reinforcing materials, such as the above glass fabrics, had the trouble that the surface hardness in an elevated temperature was low, and wirebonding nature 100 degrees C or more

fell especially. Since this deforms a substrate in case it pushes a wire against a substrate by the capillary at the time of wirebonding, in case it heats a substrate front face with moreover and a supersonic wave with inadequate deformation of the wire in the joint by forcing, it is considered for ultrasonic energy to be absorbed by the resin layer and for substrate temperature not to rise. In order to raise the wirebonding nature of a surface layer, improvement in the surface hardness in an elevated temperature is required, for that purpose, adhesives are turned high Tg (glass transition temperature), and the improvement in an elastic modulus by enlarging the elastic modulus in an elevated temperature or reinforcing materials can be considered. However, although it needed to carry out to adhesives where a fluidity, circuit restoration nature, and an adhesive property were required and they are secured, an ingredient which fills these was not obtained. That is, as high Tg adhesives, although there was polyimide etc., problems, such as being scarce, were in the adhesive property with inner layer copper foil. The filler was mixed, on the other hand, although making the elastic modulus in an elevated temperature high was also considered, the filler needed to be mixed so much, and there was a problem of an adhesive property falling. Moreover, addition of a lot of fillers had the trouble of being inferior to circuit restoration nature or surface smooth nature in order to bring about remarkable buildup of the melt viscosity of a resin system. Although it was possible to add the good liquefied resin of flow nature and to raise flow nature to the melt viscosity of a resin system becoming high, there was a trouble that the reinforcement of a film falls in this case, and became or the workability at the time of a laminating fell that it is easy to generate a crack. Since it was above, adhesives effective in wirebonding or an adhesion sheet was not obtained.

[0005] Conventionally, the GOMU epoxy resin adhesive known as adhesives or an adhesion sheet is the adhesives which mixed various rubber and epoxy resins, such as acrylic rubber and acrylonitrile-butadiene rubber, and these rubber is added in order to improve the reinforcement of adhesives, flexibility, and adhesion. Since the acrylic adhesives of these former have properties, such as an electrical property, thermal resistance, and solvent resistance, they are used for the flexible substrate application etc. Such rubber-epoxy resin adhesive had the modulus of elasticity as low as 10MPa extent in 100 degrees C, and its wirebonding nature 100 degrees C or more was bad. Although the adhesives containing acrylic resin, an epoxy resin, the poly isocyanate, and an inorganic filler are indicated by JP,60-243180,A and the adhesives containing the both-ends primary amine compound and the inorganic filler which have a urethane bond in acrylic resin, an epoxy resin, and a molecule were indicated by JP,61-138680,A, these rubber-epoxy resin adhesive had the modulus of elasticity as low as 10MPa extent in 100 degrees C, and its wirebonding nature 100 degrees C or more was bad.

[0006]

[Means for Solving the Problem] This invention has the moderate fluidity which was not able to be attained in conventional rubber-epoxy resin adhesive, is upwards excellent in circuit restoration nature or adhesion, raised the modulus of elasticity in an elevated temperature, and was aimed at offering the multilayer-interconnection plate using a metallic foil with adhesives, an adhesion sheet, and them excellent in wirebonding nature. As for this invention, the glass transition temperature at the time of (1) hardening (Tg) a liquefied epoxy resin 130 degrees C or more and its curing agent The 100 in all weight section, (2) Weight average molecular weight The 30,000 or more amount resin 20 of macromolecules - the 100 weight sections, (3) A coupling agent 0.1 - 10 weight sections, (4) The resin 100 volume section of (1) - (2) is received in the inorganic filler a hardening accelerator 0.1 - 5 weight sections, and whose (5) BET specific surface areas are 5-9m²/g. It is the metallic foil with adhesives which formed the adhesives whose elastic modulus at the time of hardening it is 15 - 100 volume ***** adhesives, and is 100 or more MPas at 130 degrees C on the metallic foil, and was changed into the semi-hardening condition. Tg at the time of (1) hardening a liquefied epoxy resin 130 degrees C or more and its curing agent Moreover, the 100 in all weight section, (2) The amount resin 1 of macromolecules whose weight average molecular weight there are said epoxy resin and compatibility and is 30,000 or more - 40 weight sections, (3) The amount resin 20 of reactive polymers whose weight average molecular weight is 100,000 or more - 70 weight sections, (4) A coupling agent 0.1 - 10 weight sections, (5) The resin 100 volume section of (1) - (2) is received in the inorganic filler a hardening accelerator 0.1 - 5 weight sections, and whose (6) BET specific surface areas are 5-9m²/g. It is the metallic foil with adhesives

which formed the adhesives whose elastic modulus at the time of hardening it is 15 - 100 volume ***** adhesives, and is 100 or more MPas at 130 degrees C on the metallic foil, and was changed into the semi-hardening condition. Moreover, it is the adhesion sheet which formed the above-mentioned adhesives on the sheet and was changed into the semi-hardening condition. And the adhesive coated surface of a metallic foil with adhesives is piled up with the circuit plate which performed circuit processing beforehand, and heating application of pressure is carried out, and after carrying out laminating unification, it is the multilayer-interconnection plate obtained by carrying out circuit processing. Furthermore a through hole is made in a metallic foil with adhesives, the adhesive coated surface is piled up with the circuit plate which performed circuit processing beforehand, the sheet which carries out plastic flow in a laminating process on the metallic foil of said metallic foil with adhesives is piled up, and heating application of pressure is carried out, and after carrying out laminating unification, it is the multilayer-interconnection plate obtained by carrying out circuit processing.

[0007]

[Embodiment of the Invention] Tg at the time of hardening of the liquefied epoxy resin used in this invention needs to be 130 degrees C or more. Less than 3,000 liquefied epoxy resin is preferably used for this for molecular weight less than 5,000 by two or more organic functions. When molecular weight uses 500 or less bisphenol A mold or a female mold liquefied epoxy resin especially, the fluidity at the time of a laminating can be improved and it is desirable. As for 500 or less bisphenol A mold or the female mold liquefied epoxy resin, molecular weight is marketed by the trade name of Epicoat 807, Epicoat 827, and Epicoat 828 from oil-ized shell epoxy incorporated company. Moreover, from Dow Chemical Japan, Inc., it is marketed by the trade name of D.E.R.330, D.E.R.331, and D.E.R.361. Furthermore, it is marketed by the trade name of YD128 and YDF170 from Tohto Kasei Co., Ltd. Moreover, Br-ized epoxy resin, the fire-resistant epoxy resin of a non-halogen system, etc. may be used for the purpose of attaining flameproofing. There are some which are marketed by the trade name of ESB400 from Sumitomo Chemical Co., Ltd. as such a thing.

[0008] A polyfunctional epoxy resin may be added to this invention for the purpose of a raise in Tg. As a polyfunctional epoxy resin, a phenol novolak mold epoxy resin, a cresol novolak mold epoxy resin, etc. can be illustrated. The phenol novolak mold epoxy resin is marketed by the trade name of EPPN-201 from Nippon Kayaku Co., Ltd. Moreover, from Sumitomo Chemical Co., Ltd., a cresol novolak mold epoxy resin is the trade name of ESCN-001 and ESCN-195, and is marketed by the trade name of Nippon Kayaku Co., Ltd. to EOCN1012, EOCN1025, and EOCN1027.

[0009] Although it does not restrict, since especially the curing agent used for a liquefied epoxy resin is excellent in the electric corrosion-proof nature at the time of moisture absorption, it is desirable to use the phenol novolak resin which has a phenolic hydroxyl group in [two or more] 1 molecule, bisphenol A mold novolak resin, and cresol novolak resin. Such a curing agent is marketed from Dainippon Ink & Chemicals, Inc. by the trade name of the FENO light LF 2882, the FENO light LF 2822, FENO light TD-2090, FENO light TD-2149, the FENO light VH4150, and the FENO light VH4170. Tg at the time of hardening of a liquefied epoxy resin needs to be 130 degrees C or more, and this is because the wirebonding nature which the modulus of elasticity in 130 degrees C or more falls in the case of less than 130 degrees C, and is carried out to it above 130 degrees C worsens.

[0010] The 30,000 or more amount resin of macromolecules requires that weight average molecular weight should be 30,000 or more, in order that the weight average molecular weight used by this invention may give the flexibility as a film or a sheet, and reinforcement to adhesives. A crack etc. will arise, it becomes easy for an insulating property to fall, if few, the flexibility of copper foil with adhesives or an adhesion sheet runs short, if many, the modulus of elasticity in an elevated temperature will fall, since wirebonding nature worsens, this amount used is made into the 20 - 100 weight section, and let it still more preferably be 30 - 70 weight section. There are an epoxy resin and compatibility and the functional-group content rubber with large phenoxy resin, amount epoxy resin of macromolecules, and polarity as amount resin of macromolecules whose weight average molecular weight is 30,000 or more etc. is mentioned. The rubber with which polar large functional-group content rubber added the functional group with a large polarity like a carboxyl group to acrylonitrile-butadiene rubber or acrylic

rubber is mentioned.

[0011] Phenoxy resin is marketed by the trade name of FENOTOTO YP-40, FENOTOTO YP-50, and FENOTOTO YP-60 from Tohto Kasei Co., Ltd. From Japan Synthetic Rubber, carboxyl group content acrylonitrile-butadiene rubber is the trade name of PNR-1, and is marketed by the trade name of Nippon Zeon Co., Ltd. to NIPORU 1072. Since the flexibility of the phase (henceforth an epoxy resin phase) which uses an epoxy resin as a principal component runs short if few, a crack etc. arises, and it becomes easy for an insulating property to fall, and Tg of an epoxy resin phase will fall if many, the amount of the amount resin of macromolecules used whose molecular weight it is the above-mentioned epoxy resin and compatibility, and is 30,000 or more is made into 1 - 40 weight section, and let it still more preferably be 10 - 40 weight section.

[0012] Although weight average molecular weight can use NBR, acrylic rubber, etc. as amount resin of reactive polymers which is 100,000 or more, it is desirable that insulation uses good reactant acrylic rubber at the time of an elevated temperature and moisture absorption. There is epoxy group content acrylic rubber as such rubber. Since its reinforcement of adhesives is small when there are few additions of the amount resin of reactive polymers whose weight average molecular weight is 100,000 or more, tuck nature becomes it is large and unsuitable, an epoxy resin phase decreases as a result of the component phase's increasing, if many, lowering of the wirebonding nature in an elevated temperature, heat-resistant lowering, and damp-proof lowering take place and it is unsuitable, it considers as the range of 20 - 70 weight section.

[0013] As a hardening accelerator, it is desirable to use various imidazole derivatives. It is required to use the high thing of especially latency. As a high imidazole of such latency, 2-methylimidazole, 2-ethyl-4-methylimidazole, 1-cyanoethyl-2-phenylimidazole, 1-cyano ethyl-2-phenyl imidazolium trimellitate, etc. are mentioned.

[0014] Imidazole derivatives are marketed from Shikoku Chemicals Corp. by the trade name of 2E4MZ, 2 PZ-CN, and 2 PZ-CNS. When there is little this amount used, it becomes late hardening laminating time amount for a long time, and it is inferior to effectiveness, and if many, since the working life of adhesives becomes short and workability falls, let it be the range of 0.1 - 5 weight section.

[0015] The coupling agent used by this invention is used in order to receive interface association between dissimilar materials. Especially as a coupling agent, a silane coupling agent is desirable. As such a silane coupling agent, gamma-glycidoxypentyltrimethoxysilane, gamma-mercaptopentyltrimethoxysilane, gamma-aminopentyl triethoxysilane, gamma-ureido pentyl triethoxysilane, N-beta-aminoethyl-gamma-aminopentyl trimethoxysilane, etc. are mentioned.

[0016] For the above mentioned silane coupling agent, gamma-glycidoxypentyltrimethoxysilane is NUC. A-187 and gamma-mercaptopentyltrimethoxysilane are NUC. A-189 and gamma-aminopentyl triethoxysilane are NUC. A-1100 and gamma-ureido pentyl triethoxysilane are NUC. A-1160 and N-beta-aminoethyl-gamma-aminopentyl trimethoxysilane are NUC. It is the trade name of A-1120, and each is marketed from Nippon Unicar, Inc.

[0017] If many [too], thermal resistance will fall, or the amount of the coupling agent used is made into 0.1 - 10 weight section from the point of that cost becomes high or effectiveness, and is made it is more desirable and fewer than 5 weight sections.

[0018] As for the inorganic filler used by this invention, it is needed that a BET specific surface area is 5-9m²/g. This has little effectiveness of the improvement in a modulus of elasticity of adhesives by a BET specific surface area being under 5m²/g, and wirebonding nature becomes low and is unsuitable. Moreover, if a BET specific surface area exceeds 9m²/g, the effectiveness of the improvement in a modulus of elasticity of adhesives is large, and although it is good, since the flow nature of semi-hardening adhesives falls remarkably, it is unsuitable [wirebonding nature]. If few, the reinforcement effectiveness of a modulus of elasticity will not be acquired, but since problems, such as flexible lowering of adhesives, adhesive lowering, and lowering of the withstand voltage by void survival, will occur if many, the 15-100 volume section activity of the amount of this inorganic filler used is carried out to the resin 100 volume section of above-mentioned (1) - (2). Here, a BET specific surface area is the value which nitrogen was made to stick to an inorganic filler and measured the surface area by the

Brunauer Emmet Taylor (Brunauer-Emmett-Teller) type, and can be measured with the BET equipment marketed. As such an inorganic filler, a grinding mold alumina, an aluminum hydroxide, a magnesium hydroxide, a calcium carbonate, a magnesium carbonate, a calcium silicate, a magnesium silicate, a calcium oxide, a magnesium oxide, aluminum nitride powder, boron nitride powder, a crystalline silica, an amorphous silica, etc. are mentioned. Furthermore, that fire-resistant improvement and adjustment of melt viscosity can be performed on the thermal conduction disposition of adhesives as accompanying effectiveness by using an inorganic filler, thixotropy's being given, and surface hardness may be able to be improved.

[0019] Among these inorganic fillers, its heat dissipation nature is good, and since alumina powder is good also in thermal resistance and insulation, it is suitable. Moreover, since there are few ionicity impurities, a crystalline silica or an amorphous silica has the high insulation at the time of PCT (pressure cooker test) processing, and since there is little corrosion of copper foil and aluminum wire, it is suitable. In order to give fire retardancy, the activity of an aluminum hydroxide and a magnesium hydroxide is desirable.

[0020] In order to adsorb an ionicity impurity and to improve the insulating dependability at the time of moisture absorption, an inorganic ion adsorbent may be used for the adhesives of this invention. Since much amount of this inorganic ion adsorbent used will cause heat-resistant lowering, lifting of cost, etc. if there is, there is than 10 weight sections, and it is made it is more desirable and fewer than 5 weight sections. [less] That to which that to which it is the trade name of IXE-100 which uses a zirconium system compound as a component, and it uses an antimony bismuth system compound as a component is the trade name of IXE-600, and uses a magnesium aluminum system compound as a component from Toagosei chemical-industry incorporated company as an inorganic ion adsorbent is the trade name of IXE-700, and is marketed. Moreover, the hydrotalcite is marketed by the trade name of DHT-4A from consonance chemical-industry incorporated company.

[0021] In addition, in order to prevent copper ionizing and beginning to melt as occasion demands, the compound, for example, triazine thiol compounds, known as copper inhibitor and a bisphenol system reducing agent may be used. As a bisphenol system reducing agent, - methylenebis - (the [4-methyl-6-] 3-butylphenol), and 2 and 2 '4, 4'-thio-screw - (the [3-methyl-6-] 3-butylphenol) is mentioned. The copper inhibitor which uses triazine thiol compounds as a component is marketed by the trade name of JISUNETTO DB from Sankyoseiyakukogyo Corp. Moreover, the copper inhibitor which uses a bisphenol system reducing agent as a component is marketed by the trade name of reed NOx BB from Yoshitomi Pharmaceutical Industries, Ltd.

[0022] It dissolves and distributes, each component is used as a varnish at a solvent, the adhesives of this invention apply and heat it on a metallic foil or C, and a solvent is removed and used for them. As a sheet, a Teflon film, the polyethylene terephthalate film which carried out mold release processing, a polyethylene terephthalate film, a polyethylene RENFI film, a polypropylene film, a polyimide film, etc. are used. And at the time of an activity, you may use it, making it exfoliate from a sheet. As such a sheet, polyethylene terephthalate films, such as polyimide films, such as Kapton (Toray Industries, the E. I. du Pont de Nemours & Co. make, trade name) and APIKARU (the Kaneka Corp. make, trade name), lumiler (Toray Industries, the E. I. du Pont de Nemours & Co. make, trade name), and PUREX (the Teijin, Ltd. make, trade name), etc. can be used, for example. Moreover, it is also possible as a metallic foil to use it as a metallic foil with adhesives by applying adhesives on copper foil or aluminium foil. As for these metallic foils, it is desirable to perform roughening processing of mat side processing etc. In addition, since the layer insulation nature of a inner layer circuit and an outer layer circuit will fall if thin, the depression at the time of wirebonding will become large and wirebonding nature will fall if thick, as for the thickness of these adhesives, it is desirable to consider as the range of 30 micrometers - 200 micrometers.

[0023] As for the solvent of varnish-izing, it is desirable to use the methyl ethyl ketone of a low-boiling point, an acetone, methyl isobutyl ketone, 2-ethoxyethanol, toluene, butyl Cellosolve, a methanol, ethanol, 2-methoxyethanol, etc. comparatively.

[0024] By this invention, when Tg uses a liquefied epoxy resin 130 degrees C or more and the amount

resin of macromolecules, and the adhesives containing an inorganic filler with a large BET specific surface area, wirebonding nature becomes possible at the temperature of at least 130 degrees C or more. As this reason, in case a flexible component and a liquefied epoxy resin component carry out phase separation at the time of hardening, since an epoxy resin phase and the complicated sea island structure to which the rubber layer became intricate mutually are formed, it is possible that the frame of an epoxy resin layer with a large elastic modulus was made, and global deformation was pressed down. When a filler is furthermore mixed for a flexible component, it is thought that rate-ization of high elasticity of a minute part which carried out phase separation was attained, and improvement in wirebonding nature was able to be aimed at. The adhesives of this invention differ from what only mixed the filler in the conventional adhesives fundamentally at the point which Tg gave the reinforcement effectiveness with a global liquefied epoxy resin 130 degrees C or more, and gave the reinforcement effectiveness of a minute part to the inorganic filler. moreover -- as the effectiveness which accompanies this invention -- the mixing ratio of a liquefied epoxy resin -- since the rate was comparatively large, moisture resistance and heat-resistant improvement were achieved, and the problem which was a fault in respect of handling nature, such as lowering of the film reinforcement of an adhesion sheet, lowering of flexibility nature, and buildup of tuck nature, was solved by the following.

- 1) Damp-proof improvement can be aimed at by having used the epoxy resin as the principal component.
- 2) By using the amount resin of macromolecules with large molecular weight, even when there are few additions, the film reinforcement of an adhesion sheet and flexibility are secured.
- 3) It is an epoxy resin and compatibility and tuck nature is reduced because weight average molecular weight adds the 30,000 or more amount resin of macromolecules.
- 4) By using the reactant amount resin of macromolecules, the property of withstand voltage and electric corrosion-proof nature is given.
- 5) By mixing an inorganic filler, reduction of tuck nature and improvement in crack-proof nature can be aimed at.

Furthermore, about a fluidity when there are many amounts of epoxy resins, and circuit restoration nature, the problem was solved by the following approaches. When the amount resin of reactive polymers is blended, in order that the functional group contained in it may react selectively and may construct a bridge and gel by this invention, the fluidity is small when many epoxy resins etc. are included. Moreover, since an unreacted component oozes out from the inside of gel when a pressure is applied, since many unreacted epoxy resins remain, even when it gels, there are little adhesive lowering and lowering of circuit restoration nature. Furthermore, since adhesives can carry out [film]-izing of the unreacted components, such as an epoxy resin, in the condition of having contained mostly, there is an advantage that the life (effective duration of service) of an adhesion sheet becomes long. Moreover, in order that melt viscosity may become large and may discover thixotropy by adding an inorganic filler, it is possible to enlarge the above-mentioned effectiveness further. In addition to the above-mentioned effectiveness, in the fire-resistant grant to adhesives, and adhesion temperature, proper viscosity can be given or properties, such as improvement in surface hardness, can be given on the heat dissipation disposition of adhesives.

[0025] It considers as the metallic foil with adhesives which prepared the adhesives layer in the metallic foil and was changed into the semi-hardening condition, the adhesive coated surface is piled up with the circuit plate which performed circuit processing beforehand, and heating application of pressure is carried out, and a multilayer-interconnection plate carries out circuit processing, and let it be a multilayer-interconnection plate, after carrying out laminating unification. This circuit processing is making the through hole used as the through hole by a drill etc., performing catalyst grant for smear processing and nonelectrolytic plating, nonelectrolytic plating, etc., or forming etching resist, removing an unnecessary metal and forming a circuit etc. moreover, the inner layer circuit plate which considered as the metallic foil with adhesives which prepared the adhesives layer in the metallic foil and was changed into the semi-hardening condition, and made the through hole for forming an interstitial BAIA hole (IVH) in the part of arbitration, and formed a inner layer circuit beforehand -- copper foil with

adhesives -- a inner layer circuit -- a conductor carries out the alignment of the aforementioned through hole to the part of the arbitration linked to an outer-layer circuit, puts it on it, piles up the sheet which carries out plastic flow on it, and carries out laminating unification. Then, the sheet which carries out plastic flow is torn off, in order to plan electrical installation of IVH and a through hole, after performing smear processing, catalyst grant, and non-electrolytic copper plating and making a metal layer form in a substrate front face after making the through hole used as a through hole in the part of the arbitration of this substrate, etching clearance of the metal layer which formed etching resist and was exposed from etching resist is carried out, and an outer layer circuit is formed and it considers as a multilayer-interconnection plate. The sheet which carries out plastic flow has softening temperature or the melting point lower than adhesives, and when carrying out laminating unification, it prevents that carry out plastic flow, fill the inside of a hole, and adhesives flow, so that the inside of the hole used as IVH may not be buried with adhesives in the case of laminating unification. The sheet which carries out plastic flow has softening temperature or the melting point lower than adhesives, for example, thermoplastics sheets, such as polyethylene and polypropylene, are mentioned.

[0026]

[Example]

(Example 1)

(1) as the production liquefied epoxy resin of a varnish -- the bisphenol A mold epoxy resin (weight-per-epoxy-equivalent 200 and Epicoat 828 by oil-ized shell epoxy incorporated company were used) 30 section (the weight section --) the following -- being the same -- a cresol novolak mold epoxy resin (ESCN001 by Sumitomo Chemical Co., Ltd. was used) -- the 10 sections As a curing agent, the bisphenol A mold novolak resin (FENO light LF 2882 by Dainippon Ink & Chemicals, Inc. was used) 25 section, weight average molecular weight -- as the 30,000 or more amount resin of macromolecules -- phenoxy resin (weight average molecular weight 50,000 --) The ten sections which used FENOTOTO YP-50 by Tohto Kasei Co., Ltd., as the amount resin of reactive polymers whose weight average molecular weight is 100,000 or more -- epoxy group content acrylic rubber (weight average molecular weight 1 million --) The 30 sections which used HTR-860P-3 by imperial chemistry industrial incorporated company, The hardening-accelerator (2 PZ-CN by Shikoku Chemicals Corp. was used) 0.5 section, To the constituent which consists of the gamma-glycidoxypropyltrimetoxysilane (NUC A-187 by Nippon Unicar, Inc. were used) 0.5 section as a coupling agent The methyl ethyl ketone was added and the alumina filler (AL-160-SG-1 by Showa Denko K.K., BET specific surface area:7m2/g) 150 section was added as an inorganic filler whose BET specific surface area is 5-9m2/g further. This was mixed with the bead mill, the methyl ethyl ketone was added further, the vacuum deairing of the viscosity was adjusted and carried out, and the adhesives varnish was produced.

[0027] (Example 2) as a liquefied epoxy resin -- the bisphenol A mold epoxy resin (weight-per-epoxy-equivalent 200 and Epicoat 828 by oil-ized shell epoxy incorporated company were used) 30 section (the weight section --) In the cresol novolak mold epoxy resin (ESCN001 by Sumitomo Chemical Co., Ltd. was used) 10 same section, as a curing agent below The bisphenol A mold novolak resin (ply OFEN LF 2882 by Dainippon Ink & Chemicals, Inc. was used) 25 section, as the amount resin of macromolecules whose weight average molecular weight is 30,000 or more -- the amount epoxy resin of macromolecules (weight average molecular weight 100,000 --) To the 40 sections, the hardening-accelerator (2 PZ-CN) 0.5 section, and the constituent that consists of gamma-glycidoxypropyltrimetoxysilane (NUC A-187 by Nippon Unicar, Inc. were used) as a coupling agent The methyl ethyl ketone was added and the alumina filler (AL-160-SG-1 by Showa Denko K.K., BET specific surface area:7m2/g) 150 section was added as an inorganic filler whose BET specific surface area is 5-9m2/g further. This was mixed with the bead mill, the methyl ethyl ketone was added further, the vacuum deairing of the viscosity was adjusted and carried out, and the adhesives varnish was produced.

[0028] (Example 1 of a comparison) The adhesives varnish was produced by the same approach as an example 1 except having made the alumina filler (AL-160-SG-1 by Showa Denko K.K.) 150 section into the alumina filler (AS-50 by Showa Denko K.K., BET specific surface area:2m2/g) 150 section.

[0029] (Example 2 of a comparison) Changed the epoxy group content acrylic rubber (molecular weight 1 million and HTR-860P-3 by imperial chemistry industrial incorporated company were used) 30 section of an example 1 into the 90 sections, and the alumina filler (AL-160-SG-1 by Showa Denko K.K.) 150 section was changed into the 200 sections, and also the adhesives varnish was produced by the same approach as an example 1. The adhesion sheet with a thickness of 80 micrometers which applied the adhesives varnish obtained in examples 1 and 2 and the examples 1 and 2 of a comparison on the polyethylene terephthalate sheet with a thickness of 70 micrometers which carried out mold release processing, carried out stoving for 15 minutes at 110 degrees C, and changed it into the semi-hardening condition of B stage condition was obtained. The adhesives layer was removed and it inserted between the smooth with a thickness of 35 micrometers side sides of copper foil of two sheets, and 2 MPa, for 60 minutes, carry out heating application of pressure, it was made to harden, etching clearance of the copper foil was carried out after that, and 170 degrees C of hardening adhesion sheets were obtained from the adhesion sheet. The modulus of elasticity in 130 degrees C of this hardening adhesion sheet was measured using DMA (the dynamic apparatus-for-thermomechanical-analysis and Du Pont make, the 982 mold DMA), and that result was shown in a table 1.

[0030]

[A table 1]

硬化接着シートの弾性率

項 目	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
130℃ (MPa)	200	300	50	10

[0031] (Production of a multilayer-interconnection plate) As blade coater was used and applied, respectively, it dried for 10 minutes at 120 degrees C and the adhesives varnish of examples 1 and 2 and the examples 1 and 2 of a comparison was shown in the roughening side of electrolytic copper foil (metallic foil 1) with a thickness of 18 micrometers at drawing 1 (a), insulating-layer thickness obtained the metallic foil 3 with adhesives in the semi-hardening condition that softening temperature is 75 degrees C, by 50 micrometers, respectively. As shown in drawing 1 (b), using this respectively, the diameter of 0.3mm and the 1.00mm through hole 4 were made in this metallic foil 3 with adhesives. it is shown in drawing 1 (c) -- as -- beforehand -- a inner layer circuit -- a conductor 51 -- forming -- the front face -- melanism -- the processed glass-epoxy double-sided inner layer circuit plate 5 with a thickness of 0.8mm up and down said copper foil 3 with adhesives -- a inner layer circuit -- in the part which a conductor 51 connects with an outer layer circuit The becoming sheet 6 which carries out plastic flow is piled up. the aforementioned through hole 4 -- alignment -- carrying out -- piling up -- further -- the -- up and down -- a 90-micrometer polyolefine system polymer -- since -- These were inserted with the end plate 8 made from stainless steel, and whenever [pressure 2MPa and stoving temperature], for [170 degrees-C, and part / for // and programming-rate elevated-temperature holding-time / of 10 degrees C] 60 minutes, the condition for cooling rate/of -10 degrees C, as a press laminating was performed and it was shown in drawing 1 (d), laminating unification was carried out under reduced pressure of 10torr. Then, as shown in drawing 1 (e), after tearing off the sheet 6 which carries out plastic flow, making a through hole (through hole) 9, performing non-electrolytic copper plating and electrolytic copper plating and forming a copper layer with a thickness of 15 micrometers in the whole, as etching resist was formed, etching clearance was carried out and the copper exposed from etching resist was shown in drawing 1 (f), the outer layer circuit was formed and it considered as the multilayer printed wiring board. Furthermore, nickel plating with a thickness of 5 micrometers was performed in the wirebonding pad section, and non-electrolyzed gilding with a thickness of 0.2 micrometers was further performed on it. Thus, the engine performance was evaluated for the produced multilayer printed wiring board and the ingredient used for it as follows, and the result was shown in a table 3.

[0032] Surface roughness: Using the contact process surface roughness meter, "size" and when a surface level difference exceeded the thickness of a inner layer circuit, and not exceeding, it evaluated as "smallness."

Wirebonding nature assessment: Wirebonding was performed made in Shinkawa, Inc. and using ultrasonic heat heating nail heading method wirebonding opportunity UTC-230B1 on the conditions shown in a table 2 using a golden wire (phi30micrometer). After performing wirebonding, the pull reinforcement of the wire of a sample was measured, 8g or more of a certain things was made good, and that less than 8g or whose wirebonding was not completed was evaluated as a defect.

Flexibility: When copper foil with adhesives was twisted and twisted around a cylinder with a diameter of 50mm at 25 degrees C, the existence of crack initiation estimated.

Workability: Punch performed hole down to copper foil with adhesives, and what makes a defect what generating or resin waste of a crack etc. generated around the punch hole, and does not have them was evaluated as good.

[0033]

[A table 2]

ワイヤボンディング条件

項 目	設定条件
超音波出力時間	5 0 μ s
超音波出力	1 W
ボンド荷重	1 0 0 g f
温度	1 3 0℃
ループ形状	スタンダード

[0034]

[A table 3]

項目	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
ワイヤボンディング	良好	良好	不良	不良
表面粗さ	小	小	小	小
可撓性	良好	良好	良好	良好
加工性	良好	良好	良好	良好

[0035] The multilayer-interconnection plate of examples 1 and 2 is excellent in 130-degree C wirebonding nature, and also excellent in flexibility and circuit restoration nature. Moreover, since the small ball-shaped filler of a BET specific surface area was being used for the example 1 of a comparison, its modulus of elasticity in 130 degrees C was low, and it was poor. [of 130-degree C

wirebonding nature] Moreover, since the example 2 of a comparison had many amounts of epoxy group content acrylic rubbers specified by this invention, its modulus of elasticity in 130 degrees C was low, and it was poor. [of wirebonding nature]

[0036]

[Effect of the Invention] As mentioned above, as explained, the multilayer-interconnection plate using the copper foil with adhesives of this invention and an adhesion sheet is excellent in wirebonding nature, and also excellent in flexibility and circuit restoration nature.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The glass transition temperature at the time of hardening (T_g) a liquefied epoxy resin 130 degrees C or more and its curing agent (1) The 100 in all weight section, (2) Weight average molecular weight The 30,000 or more amount resin 20 of macromolecules - the 100 weight sections, (3) A coupling agent 0.1 - 10 weight sections, (4) The resin 100 volume section of (1) - (2) is received in the inorganic filler a hardening accelerator 0.1 - 10 weight sections, and whose (5) BET specific surface areas are 5-9m²/g. The metallic foil with adhesives which formed the adhesives whose elastic modulus at the time of hardening it is 15 - 100 volume ***** adhesives, and is 100 or more MPas at 130 degrees C on the metallic foil, and was changed into the semi-hardening condition.

[Claim 2] T_g at the time of hardening a liquefied epoxy resin 130 degrees C or more and its curing agent (1) The 100 in all weight section, (2) The amount resin 1 of macromolecules whose weight average molecular weight there are said epoxy resin and compatibility and is 30,000 or more - 40 weight sections, (3) The amount resin 20 of reactive polymers whose weight average molecular weight is 100,000 or more - 70 weight sections, (4) A coupling agent 0.1 - 10 weight sections, (5) The resin 100 volume section of (1) - (2) is received in the inorganic filler a hardening accelerator 0.1 - 5 weight sections, and whose (6) BET specific surface areas are 5-9m²/g. The metallic foil with adhesives which formed the adhesives whose elastic modulus at the time of hardening it is 15 - 100 volume ***** adhesives, and is 100 or more MPas at 130 degrees C on the metallic foil, and was changed into the semi-hardening condition.

[Claim 3] The adhesion sheet which formed adhesives according to claim 1 or 2 on the sheet, and was changed into the semi-hardening condition.

[Claim 4] The multilayer-interconnection plate which piles up the adhesive coated surface of a metallic foil with adhesives according to claim 1 or 2 with the circuit plate which performed circuit processing beforehand, carries out heating application of pressure, and is obtained by carrying out circuit processing after carrying out laminating unification.

[Claim 5] The multilayer-interconnection plate which makes a through hole in a metallic foil with adhesives according to claim 1 or 2, piles up the adhesive coated surface with the circuit plate which performed circuit processing beforehand, piles up the sheet which carries out plastic flow in a laminating process on the metallic foil of said metallic foil with adhesives, carries out heating application of pressure, and is obtained by carrying out circuit processing after carrying out laminating unification.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-302313

(43) 公開日 平成9年(1997)11月25日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 J 7/02	J H X		C 0 9 J 7/02	J H X
	J J X			J J X
	J K A			J K A
	J K E			J K E
	J K K			J K K

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平8-114446	(71) 出願人	000004455 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(22) 出願日	平成8年(1996)5月9日	(72) 発明者	稲田 禎一 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内
		(72) 発明者	中祖 昭士 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内
		(72) 発明者	高橋 敦之 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内
		(74) 代理人	弁理士 若林 邦彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着剤付き金属箔、接着シート及び多層配線板

(57) 【要約】

【課題】適度な流動性、回路充填性、密着性及び高温での高い弾性率を有したワイヤボンディング性に優れた接着剤付き金属箔、接着シート及び多層配線板を提供する。

【解決手段】硬化時のガラス転移温度 (T_g) が 130°C 以上の液状エポキシ樹脂及びその硬化剤を合わせて100重量部、重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂20~100重量部、硬化促進剤0.1~5重量部、カップリング剤0.1~10重量部及びBET表面積が $5\sim 9\text{ m}^2/\text{g}$ の無機フィラーを前記樹脂100体積部に對して15~100体積部含む接着剤であってかつ硬化時の弾性率が 130°C で100MPa以上である接着剤を金属箔上またはシート上に設け半硬化状態にして得られる接着剤付き金属箔または接着シート。これを用いた多層配線板。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】(1)硬化時のガラス転移温度(T_g)が130℃以上の液状エポキシ樹脂及びその硬化剤を合わせて100重量部、(2)重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂20~100重量部、(3)カップリング剤0.1~10重量部、(4)硬化促進剤0.1~10重量部及び(5)BET比表面積が5~9 m^2/g の無機フィラーを(1)~(2)の樹脂100体積部に対して15~100体積部含む接着剤であってかつ硬化時の弾性率が130℃で100MPa以上である接着剤を金属箔上に設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔。

【請求項2】(1)硬化時の T_g が130℃以上の液状エポキシ樹脂及びその硬化剤を合わせて100重量部、(2)前記エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上である高分子量樹脂1~40重量部、(3)重量平均分子量が10万以上である反応性高分子量樹脂20~70重量部、(4)カップリング剤0.1~10重量部、(5)硬化促進剤0.1~5重量部及び(6)BET比表面積が5~9 m^2/g の無機フィラーを(1)~(2)の樹脂100体積部に対して15~100体積部含む接着剤でありかつ硬化時の弾性率が130℃で100MPa以上である接着剤を金属箔上に設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔。

【請求項3】請求項1または請求項2に記載の接着剤をシート上に設け半硬化状態にした接着シート。

【請求項4】請求項1または請求項2に記載の接着剤付き金属箔の接着剤面を予め回路加工を施した回路板と重ね、加熱加圧して積層一体化した後、回路加工して得られる多層配線板。

【請求項5】請求項1または請求項2に記載の接着剤付き金属箔に貫通穴をあけ、その接着剤面を予め回路加工を施した回路板と重ね、前記接着剤付き金属箔の金属箔の上に積層過程で塑性流動するシートを重ね、加熱加圧して積層一体化した後、回路加工して得られる多層配線板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、接着剤付き金属箔、接着シート及びそれらを使用した多層配線板に関する。

【0002】

【従来の技術】通常、プリント配線板を高密度化するには、一般に、配線層数を増やす方法がとられているが、配線層数を増やすと必然的に、各層間の電気的接続のための接続穴が増加する。従来、この層間接続には貫通穴が用いられていたため、貫通穴が増加すると、貫通穴による面積が増加し、その増加した分、配線を形成する面積が減少するので、配線層数の増加の割には高密度化できないという問題があった。

【0003】そこで、電気的接続が必要な箇所にのみ層

2

間の接続を行なう方法が開発され、多層プリント配線板において内層のスルーホール、外層と内層を接続するサーフェスビアホールといったいわゆるインタステシヤルビアホール(IVH)を設けたものがある。このIVH入り多層プリント配線板は、高密度化に有効である他に、配線自由度が向上する、電気的特性の向上及び配線長を短くできる等のメリットがあるが、従来の方法では製造工程が複雑になるため、製造工程を簡素化し低コストにするとともに、さらなる高密度化を目指す方法が提案されている。このようなものとして、接着剤付き金属箔の接着剤面を予め回路加工した回路板と重ね、加熱加圧して積層一体化し、必要に応じてドリル加工やレーザ光による穴加工によりIVHやスルーホールを設けた多層配線板がある。また、接着剤付き金属箔に貫通穴をあけ、その接着剤面を予め回路加工した回路板と重ね、加熱加圧して積層一体化する多層配線板がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】近年、基板の小型化を目的として、配線の高密度化と並んで、高密度化チップ実装が重要となっており、基板上にベアチップを配しベアチップと配線をワイヤボンディングして接続を図ることが要求されている。ワイヤボンディングを行う際の基板表面の温度としては、ワイヤボンディングを行う時間が短縮できる点及びワイヤのプル強度が高く、強度のばらつきが小さくなる点から130℃以上であることが望ましいとされている。上記のようなガラスクロス等の補強材を含まない層で多層化する多層配線板は、表面層がガラスクロスを含まない層であるため、特に高温での表面硬度が低く、100℃以上でのワイヤボンディング性が低下するという問題点があった。これはワイヤボンディング時にキャピラリで基板にワイヤを押しつける際、基板が変形するため、押しつけによる接合部でのワイヤの変形が不十分であることまた超音波により基板表面の加熱を行う際、超音波エネルギーが樹脂層に吸収され基板温度が上昇しないためと考えられる。表面層のワイヤボンディング性を向上させるためには、高温での表面硬度の向上が必要であり、そのためには、接着剤を高 T_g (ガラス転移温度)化し、高温での弾性率を大きくすること、あるいは補強材による弾性率向上が考えられる。しかしながら、接着剤には、流動性、回路充填性、接着性が要求されそれらを確保した状態で行う必要があるが、これらを満たすような材料は得られていなかった。すなわち、高 T_g 接着剤として、ポリイミド等があるが、内層銅箔との接着性に乏しい等の問題があった。一方、フィラーを混合して、高温での弾性率を高くすることも考えられるがフィラーを多量に混合する必要があるが、接着性が低下する等の問題があった。また多量のフィラーの添加は樹脂系の溶融粘度の著しい増大をもたらすため、回路充填性や表面平滑性に劣る問題点があった。樹脂系の溶融粘度が高くなることに対して、フロー

性の良い液状樹脂を添加し、フロー性を向上させることが考えられるが、この場合、フィルムの強度が低下して割れが発生しやすくなったり積層時の作業性が低下するという問題点があった。以上のようなことから、ワイヤボンディングに有効な接着剤あるいは接着シートは得られていなかった。

【0005】従来、接着剤あるいは接着シートとして知られているゴム-エポキシ樹脂系接着剤は、アクリルゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム等の各種ゴムとエポキシ樹脂を混合した接着剤であり、これらのゴムは、接着剤の強度、可とう性及び密着性を改善するために添加されている。これら従来のアクリル系接着剤は、電気特性、耐熱性、耐溶剤性等の特性を有することから、フレキシブル基板用途等に使用されている。このようなゴム-エポキシ樹脂系接着剤は100℃での弾性率が10MPa程度と低く、100℃以上でのワイヤボンディング性が悪いものであった。特開昭60-243180号公報には、アクリル系樹脂、エポキシ樹脂、ポリイソシアネート及び無機フィラーを含む接着剤が開示されており、また特開昭61-138680号公報には、アクリル系樹脂、エポキシ樹脂、分子中にウレタン結合を有する両末端第1級アミン化合物及び無機フィラーを含む接着剤が開示されているが、これらのゴム-エポキシ樹脂系接着剤は100℃での弾性率が10MPa程度と低く、100℃以上でのワイヤボンディング性が悪いものであった。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、従来のゴム-エポキシ樹脂系接着剤において達成できなかった適度な流動性を有し、回路充填性や密着性に優れている上に高温での弾性率を向上させ、ワイヤボンディング性に優れた接着剤付き金属箔、接着シート及びそれらを用いた多層配線板を提供することを目的にした。本発明は、

(1) 硬化時のガラス転移温度(T_g)が130℃以上の液状エポキシ樹脂及びその硬化剤を合わせて100重量部、(2) 重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂20～100重量部、(3) カップリング剤0.1～10重量部、(4) 硬化促進剤0.1～5重量部及び

(5) BET比表面積が5～9m²/gの無機フィラーを(1)～(2)の樹脂100体積部に対して15～100体積部含む接着剤であってかつ硬化時の弾性率が130℃で100MPa以上である接着剤を金属箔上に設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔である。また、

(1) 硬化時のT_gが130℃以上の液状エポキシ樹脂及びその硬化剤を合わせて100重量部、(2) 前記エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上である高分子量樹脂1～40重量部、(3) 重量平均分子量が10万以上である反応性高分子量樹脂20～70重量部、(4) カップリング剤0.1～10重量部、(5) 硬化促進剤0.1～5重量部及び(6) BET比

表面積が5～9m²/gの無機フィラーを(1)～

(2)の樹脂100体積部に対して15～100体積部含む接着剤でありかつ硬化時の弾性率が130℃で100MPa以上である接着剤を金属箔上に設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔である。また、上記接着剤をシート上に設け半硬化状態にした接着シートである。そして、接着剤付き金属箔の接着剤面を予め回路加工を施した回路板と重ね、加熱加圧して積層一体化した後、回路加工して得られる多層配線板である。さらに接着剤付き金属箔に貫通穴を明け、その接着剤面を予め回路加工を施した回路板と重ね、前記接着剤付き金属箔の金属箔の上に積層過程で塑性流動するシートを重ね、加熱加圧して積層一体化した後、回路加工して得られる多層配線板である。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明において使用される液状エポキシ樹脂は、硬化時のT_gが130℃以上である必要がある。これには、二官能以上で、分子量が5,000未満、好ましくは3,000未満の液状エポキシ樹脂が使用される。特に、分子量が500以下のビスフェノールA型またはF型液状エポキシ樹脂を用いると積層時の流動性を向上することができて好ましい。分子量が500以下のビスフェノールA型またはF型液状エポキシ樹脂は、油化シェルエポキシ株式会社から、エピコート807、エピコート827、エピコート828の商品名で市販されている。また、ダウケミカル日本株式会社からは、D. E. R. 330、D. E. R. 331、D. E. R. 361の商品名で市販されている。さらに、東都化成株式会社から、YD128、YDF170の商品名で市販されている。また、難燃化を図ることを目的に、Br化エポキシ樹脂、非ハロゲン系の難燃性エポキシ樹脂等を使用しても良い。このようなものとして住友化学工業株式会社からESB400の商品名で市販されているものがある。

【0008】本発明には、高T_g化を目的に多官能エポキシ樹脂を加えてもよい。多官能エポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂やクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等を例示できる。フェノールノボラック型エポキシ樹脂は、日本化薬株式会社から、EPPN-201の商品名で市販されている。また、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂は、住友化学工業株式会社から、ESCN-001、ESCN-195の商品名で、また、日本化薬株式会社から、EOCN1012、EOCN1025、EOCN1027の商品名で市販されている。

【0009】液状エポキシ樹脂に使用する硬化剤は、特に制限するものではないが、吸湿時の耐電食性に優れることから、フェノール性水酸基を1分子中に2個以上有するフェノールノボラック樹脂、ビスフェノールA型ノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂を用いるのが

好ましい。このような硬化剤は、大日本インキ化学工業株式会社から、フェノライトLF2882、フェノライトLF2822、フェノライトTD-2090、フェノライトTD-2149、フェノライトVH4150、フェノライトVH4170の商品名で市販されている。液状エポキシ樹脂の硬化時のT_gは130℃以上である必要があり、これは130℃未満の場合には、130℃以上での弾性率が低下してしまい、130℃以上で行われるワイヤボンディング性が悪くなるためである。

【0010】本発明で用いる重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂は、接着剤にフィルムあるいはシートとしての可撓性と強度を付与するため、重量平均分子量が3万以上であることが必要である。この使用量は、少ないと接着剤付き銅箔または接着シートの可撓性が不足し、クラック等が生じ絶縁特性が低下しやすくなり、多いと高温での弾性率が低下し、ワイヤボンディング性が悪くなるため20～100重量部とされ、さらに好ましくは30～70重量部とされる。エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上である高分子量樹脂としては、フェノキシ樹脂、高分子量エポキシ樹脂、極性の大きい官能基含有ゴム等が挙げられる。極性の大きい官能基含有ゴムは、アクリロニトリル-ブタジエンゴムやアクリルゴムにカルボキシル基のような極性が大きい官能基を付加したゴムが挙げられる。

【0011】フェノキシ樹脂は、東都化成株式会社から、フェノトートYP-40、フェノトートYP-50、フェノトートYP-60の商品名で市販されている。カルボキシル基含有アクリロニトリル-ブタジエンゴムは、日本合成ゴムから、PNR-1の商品名で、また、日本ゼオン株式会社から、ニポール1072の商品名で市販されている。上記エポキシ樹脂と相溶性でありかつ分子量が3万以上である高分子量樹脂の使用量は、少ないとエポキシ樹脂を主成分とする相（以下エポキシ樹脂相という）の可撓性が不足し、クラック等が生じ絶縁特性が低下しやすくなり、多いとエポキシ樹脂相のT_gが低下するため、1～40重量部とされ、さらに好ましくは10～40重量部とされる。

【0012】重量平均分子量が10万以上である反応性高分子量樹脂としては、NBR、アクリルゴム等を使用することができるが、高温時及び吸湿時においても絶縁性が良好な反応性のアクリルゴムを使用することが好ましい。このようなゴムとしては、エポキシ基含有アクリルゴムがある。重量平均分子量が10万以上である反応性高分子量樹脂の添加量は、少ないと接着剤の強度が小さく、タック性が大きく不適当となり、多いとその成分相が多くなる結果、エポキシ樹脂相が少なくなり高温でのワイヤボンディング性の低下、耐熱性の低下、耐湿性の低下が起こるため不適当であるので、20～70重量部の範囲とされる。

【0013】硬化促進剤としては、各種イミダゾール類

を用いることが好ましい。特に潜在性の高いものを使用することが必要である。このような潜在性の高いイミダゾールとしては、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート等が挙げられる。

【0014】イミダゾール類は、四国化成工業株式会社から、2E4MZ、2PZ-CN、2PZ-CNSの商品名で市販されている。この使用量は、少ないと、硬化が遅く積層時間が長くなり効率に劣り、多いと、接着剤の可使時間が短くなり作業性が低下するので、0.1～5重量部の範囲とされる。

【0015】本発明で使用するカップリング剤は、異種材料間の界面結合をよくするために、使用する。カップリング剤としては、シランカップリング剤が特に好ましい。このようなシランカップリング剤としては、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン、N- β -アミノエチル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

【0016】前記したシランカップリング剤は、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシランがNUC A-187、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシランがNUC A-189、 γ -アミノプロピルトリエトキシシランがNUC A-1100、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシランがNUC A-1160、N- β -アミノエチル- γ -アミノプロピルトリメトキシシランがNUC A-1120の商品名で、いずれも日本ユニカー株式会社から市販されている。

【0017】カップリング剤の使用量は、多すぎると耐熱性が低下したり、コストが高くなることや効果の点から、0.1～10重量部とされ、より好ましくは5重量部より少なくする。

【0018】本発明で使用する無機フィラーは、BET比表面積が5～9m²/gであることが必要とされる。これは、BET比表面積が5m²/g未満であると、接着剤の弾性率向上の効果が少なく、ワイヤボンディング性が低くなり不適当である。またBET比表面積が9m²/gを越えると、接着剤の弾性率向上の効果は大きく、ワイヤボンディング性は良好であるが半硬化接着剤のフロー性が著しく低下するため不適当である。この無機フィラーの使用量は、少ないと弾性率の補強効果が得られず、多いと接着剤の可撓性の低下、接着性の低下、ボイド残存による耐電圧の低下等の問題が発生するので、上記(1)～(2)の樹脂100体積部に対して15～100体積部使用される。ここで、BET比表面積は、ブルナウアー・エメット・テラー (Brunauer-Emmett-Teller) 式により、無機フィラーに窒素を吸着させてその表面積を測定した値であり、市販されているBE

T装置により測定できる。このような無機フィラーとして、粉砕型アルミナ、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム粉末、窒化ホウ素粉末、結晶性シリカ、非晶性シリカ等が挙げられる。さらに、無機フィラーを使用することによる付随効果として接着剤の熱伝導性向上、難燃性向上、溶融粘度の調整を行えること、チクソトロピック性を付与できること、表面硬度を向上できること等がある。

【0019】これらの無機フィラーのうち、アルミナ粉末は、放熱性が良く、耐熱性、絶縁性においても良好であるので好適である。また、結晶性シリカまたは非晶性シリカは、イオン性不純物が少ないので、PCT（プレッシャークッカーテスト）処理時の絶縁性が高く、銅箔、アルミ線の腐食が少ないので好適である。難燃性を付与するには、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムの使用が好ましい。

【0020】本発明の接着剤には、イオン性不純物を吸着して、吸湿時の絶縁信頼性をよくするために、無機イオン吸着剤を使用してもよい。この無機イオン吸着剤の使用量は、多いと耐熱性の低下やコストの上昇等を招くので10重量部より少なく、より好ましくは5重量部より少なくする。無機イオン吸着剤としては、東亜合成化学工業株式会社から、ジルコニウム系化合物を成分とするものがIXE-100の商品名で、アンチモンビスマス系化合物を成分とするものがIXE-600の商品名で、マグネシウムアルミニウム系化合物を成分とするものがIXE-700の商品名で、市販されている。また、ハイドロタルサイトは、協和化学工業株式会社から、DHT-4Aの商品名で市販されている。

【0021】この他、必要により、銅がイオン化して溶け出すのを防止するため、銅害防止剤として知られる化合物例えば、トリアジンチオール化合物、ビスフェノール系還元剤を使用してもよい。ビスフェノール系還元剤としては、2, 2'-メチレンビス-（4-メチル-6-第3-ブチルフェノール）、4, 4'-チオビス-（3-メチル-6-第3-ブチルフェノール）が挙げられる。トリアジンチオール化合物を成分とする銅害防止剤は、三協製薬株式会社から、ジスネットDBの商品名で市販されている。またビスフェノール系還元剤を成分とする銅害防止剤は、吉富製薬株式会社から、ヨシノックスBBの商品名で市販されている。

【0022】本発明の接着剤は、各成分を溶剤に溶解・分散してワニスとし、金属箔またはシー上に塗布し、加熱して溶剤を除去して使用する。シートとしては、テフロンフィルム、離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリイミドフィルム等が使用される。そして、使用時に

は、シートから剥離させて使用しても良い。このようなシートとしては、例えば、カプトン（東レ、デュボン株式会社製、商品名）、アピカル（鐘淵化学工業株式会社製、商品名）等のポリイミドフィルム、ルミラー（東レ、デュボン株式会社製、商品名）、ビューレックス（帝人株式会社製、商品名）等のポリエチレンテレフタレートフィルム等を使用することができる。また、金属箔として、銅箔やアルミニウム箔上に、接着剤を塗布することにより、接着剤付き金属箔として使用することも可能である。これらの金属箔は、マット面処理等の粗化処理を行っていることが好ましい。なお、これら接着剤の厚みは、薄いと内層回路と外層回路との層間絶縁性が低下し、厚いとワイヤボンディング時の凹みが大きくなりワイヤボンディング性が低下するので、30 μ m～200 μ mの範囲とするのが好ましい。

【0023】ワニス化の溶剤は、比較的低沸点の、メチルエチルケトン、アセトン、メチルイソブチルケトン、2-エトキシエタノール、トルエン、ブチルセルソルブ、メタノール、エタノール、2-メトキシエタノール等を用いるのが好ましい。

【0024】本発明では、Tgが130℃以上の液状エポキシ樹脂及び高分子量樹脂、BET比表面積が大きい無機フィラーを含む接着剤を使用することにより、少なくとも130℃以上の温度で、ワイヤボンディング性が可能となる。この理由として、硬化時に可撓性成分と液状エポキシ樹脂成分が相分離する際、エポキシ樹脂相とゴム層が相互に入り組んだ複雑な海島構造を形成するため弾性率の大きいエポキシ樹脂層の骨格ができ大域的な変形が押えられたことが考えられる。さらに可撓性成分にフィラーが混合することにより相分離した微小部分の高弾性率化が図られ、ワイヤボンディング性の向上を図ることができたと考えられる。本発明の接着剤は、Tgが130℃以上の液状エポキシ樹脂が大域的な補強効果を付与し、無機フィラーに微小部分の補強効果を付与した点で、従来の接着剤に単にフィラーを混合したものと、根本的に異なる。また、本発明に付随する効果としては、液状エポキシ樹脂の混合比率が比較的大きいため、耐湿性、耐熱性の向上が図られ、また、下記により、接着シートのフィルム強度の低下、可撓性の低下、タック性の増大等の取り扱い性の点で欠点であった問題を解決した。

1) エポキシ樹脂を主成分としたことで、耐湿性の向上がはかれる。

2) 分子量の大きい高分子量樹脂を使用することで添加量が少ない場合でも、接着シートのフィルム強度及び可撓性が確保される。

3) エポキシ樹脂と相溶性でありかつ重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂を加えることで、タック性が低減される。

4) 反応性の高分子量樹脂を使用することにより、耐電

圧及び耐電食性の特性が付与される。

5) 無機フィラーを混合することで、タック性の低減及び耐クラック性の向上がはかれる。

さらに、エポキシ樹脂量が多い場合の流動性、回路充填性に関しては、以下の方法で問題を解決した。本発明で、反応性高分子量樹脂を配合した場合、それに含まれる官能基が部分的に反応し、架橋してゲル化するために、エポキシ樹脂等を多く含む場合においても流動性が小さくなっている。また、未反応のエポキシ樹脂が多数残存しているため、圧力がかかった場合、ゲル中より未反応成分がしみだすため、ゲル化した場合でも、接着性の低下や回路充填性の低下が少ない。さらに、接着剤がエポキシ樹脂等の未反応成分を多く含んだ状態でフィルム化できるため、接着シートのライフ（有効使用期間）が長くなるという利点がある。また、無機フィラーを添加することにより、熔融粘度が大きくなり、チクソトロピック性を発現するために、上記効果をさらに大きくすることが可能である。上記の効果に加えて、接着剤の放熱性向上、接着剤への難燃性の付与、接着温度において適正な粘度をもたせたり表面硬度の向上等の特性を付与できる。

【0025】多層配線板は、金属箔に接着剤層を設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔とし、その接着剤面を予め回路加工を施した回路板と重ね、加熱加圧して積層一体化した後、回路加工して多層配線板とする。この回路加工は、ドリル等によるスルーホールとなる貫通穴をあけたり、スミア処理、無電解めっきのための触媒付与、無電解めっき等を行ったり、エッチングレジストを形成し、不必要な金属を除去し回路を形成すること等である。また、金属箔に接着剤層を設け半硬化状態にした接着剤付き金属箔とし、インタースティシャルバイアホール（IVH）を形成するための貫通穴を任意の箇所にあけ、そして、予め、内層回路を形成した内層回路板に、接着剤付き銅箔を、内層回路導体が外層回路と接続する任意の箇所に、前記の貫通穴を位置合わせして重ね、その上に塑性流動するシートを重ね積層一体化する。この後、塑性流動するシートを引き剥がし、この基板の任意の箇所にスルーホールとなる貫通穴をあけたのち、IVH及びスルーホールの電気的接続を図るために、スミア処理、触媒付与、無電解銅めっきを行ない、基板表面に金属層を形成させた後、エッチングレジストを形成し、エッチングレジストから露出した金属層をエッチング除去し、外層回路を形成して多層配線板とする。塑性流動するシートは、積層一体化の際にIVHとなる穴内が、接着剤で埋まらないように、接着剤よりも軟化点もしくは融点が高いもので、積層一体化するとき塑性流動させて穴内を埋め接着剤が流入するのを防止する。塑性流動するシートは、接着剤よりも軟化点もしくは融点が高いもので、例えばポリエチレン、ポリプロピレン等の熱可塑性樹脂シートが挙げられる。

【0026】

【実施例】

（実施例1）

（1）ワニスの作製

液状エポキシ樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量200、油化シェルエポキシ株式会社製のエビコート828を使用した）30部（重量部、以下同じ）に、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（住友化学工業株式会社製のESC N001を使用した）10部、硬化剤としてビスフェノールA型ノボラック樹脂（大日本インキ化学工業株式会社製のフェノライトLF2882を使用した）25部、重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂としてフェノキシ樹脂（重量平均分子量5万、東都化成株式会社製のフェノトートYP-50を使用した）10部、重量平均分子量が10万以上である反応性高分子量樹脂としてエポキシ基含有アクリルゴム（重量平均分子量100万、帝国化学産業株式会社製のHTR-860P-3を使用した）30部、硬化促進剤（四国化成工業株式会社製の2PZ-CNを使用した）0.5部、カップリング剤としてアグリスドキシプロピトリメトキシシラン（日本ユニカー株式会社製のNUC A-187を使用した）0.5部からなる組成物に、メチルエチルケトンを加え、さらにBET比表面積が5~9m²/gである無機フィラーとしてアルミナフィラー（昭和電工株式会社製のAL-160-SG-1、BET比表面積：7m²/g）150部を加えた。これをビーズミルで混合し、さらにメチルエチルケトンを加えて粘度を調整し、真空脱気し、接着剤ワニスを作製した。

【0027】（実施例2）液状エポキシ樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量200、油化シェルエポキシ株式会社製のエビコート828を使用した）30部（重量部、以下同じ）、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（住友化学工業株式会社製のESC N001を使用した）10部に硬化剤としてビスフェノールA型ノボラック樹脂（大日本インキ化学工業株式会社製のプライオーフェンLF2882を使用した）25部、重量平均分子量が3万以上である高分子量樹脂として高分子量エポキシ樹脂（重量平均分子量10万、）40部、硬化促進剤（2PZ-CN）0.5部、カップリング剤としてアグリスドキシプロピトリメトキシシラン（日本ユニカー株式会社製のNUC A-187を使用した）からなる組成物に、メチルエチルケトンを加え、さらにBET比表面積が5~9m²/gである無機フィラーとしてアルミナフィラー（昭和電工株式会社製のAL-160-SG-1、BET比表面積：7m²/g）150部を加えた。これをビーズミルで混合し、さらにメチルエチルケトンを加えて粘度を調整し、真空脱気し、接着剤ワニスを作製した。

【0028】（比較例1）アルミナフィラー（昭和電工

株式会社製のAL-160-SG-1)150部をアルミナフィラー(昭和電工株式会社製のAS-50、BE T比表面積:2m²/g)150部にしたこと以外は実施例1と同様の方法で接着剤ワニスを作製した。

【0029】(比較例2)実施例1のエポキシ基含有アクリルゴム(分子量100万、帝国化学産業株式会社製のHTR-860P-3を使用した)30部を90部に変更し、アルミナフィラー(昭和電工株式会社製のAL-160-SG-1)150部を200部に変更した他は実施例1と同様の方法で接着剤ワニスを作製した。実施例1、2及び比較例1、2で得られた接着剤ワニスを、厚さ70μmの離型処理したポリエチレンテレフタ*硬化接着シートの弾性率

*レートシート上に塗布し、110℃で15分間加熱乾燥して、Bステージ状態の半硬化状態にした厚み80μmの接着シートを得た。その接着シートから、接着剤層を剥がし、厚さ35μmの2枚の銅箔の平滑面側の間に挟み、170℃、2MPa、60分間、加熱加圧して硬化させ、その後銅箔をエッチング除去して硬化接着シートを得た。この硬化接着シートの130℃における弾性率をDMA(ダイナミック熱機械分析装置、デュボン社製、982型DMA)を用いて測定し、その結果を表1に示した。

【0030】

【表1】

項 目	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
130℃ (MPa)	200	300	50	10

【0031】(多層配線板の作製)厚さ18μmの電解銅箔(金属箔1)の粗化面に、実施例1、2、比較例1、2の接着剤ワニスをそれぞれブレードコートを用いて塗布し、120℃で10分間乾燥し、図1(a)に示すように、絶縁層厚さが50μmで軟化点が75℃の半硬化状態の接着剤付き金属箔3をそれぞれ得た。これをそれぞれ用いて図1(b)に示すように、この接着剤付き金属箔3に、直径0.3mmと1.00mmの貫通穴4をあけた。図1(c)に示すように、予め、内層回路導体51を形成し、その表面を黒化処理した厚さ0.8mmのガラスエポキシ両面内層回路板5の上下に、前記接着剤付き金属箔3を、内層回路導体51が外層回路と接続する箇所に、前記の貫通穴4を位置合わせして重ね、さらに、その上下に90μmのポリオレフィン系ポリマでからなる塑性流動するシート6を重ね、これらをステンレス製の鏡板8で挟み、圧力2MPa、加熱温度170℃、昇温速度10℃/分、高温保持時間60分間、冷却速度-10℃/分の条件で、10torrの減圧下で、プレス積層を行ない、図1(d)に示すように、積層一体化した。その後、図1(e)に示すように、塑性流動するシート6を引き剥がし、貫通穴(スルーホール)9をあけたのち、無電解銅めっきと電解銅め

※面の段差が、内層回路の厚さを越えるときに「大」、越えないときに「小」として評価した。

ワイヤボンディング性評価:新川株式会社製、超音波熱加熱ネイルヘッド方式ワイヤボンディング機UTC-230B1を用い、金ワイヤ(φ30μm)を使用して表2に示す条件でワイヤボンディングを行った。ワイヤボンディングを行った後試料のワイヤのアル強度を測定し、8g以上あるものを良好とし、8g未満もしくはワイヤボンディングができなかったものを不良として評価した。

可とう性:接着剤付き銅箔を、25℃で直径50mmの円筒に巻きつけ、巻きつけたときクラック発生の有無により評価した。

加工性:接着剤付き銅箔にパンチにて穴明けを行い、パンチ穴周辺にクラック等の発生または、樹脂くずが発生したものを不良としそれらが無いものを良好として評価した。

【0033】

【表2】

【0032】表面粗さ:接触式表面粗さ計を用いて、表※50

13
ワイヤボンディング条件

*【表3】

14

項 目	設定条件
超音波出力時間	50 μ s
超音波出力	1W
ボンド荷重	100gf
温度	130℃
ループ形状	スタンダード

10

【0034】

*

項目	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
ワイヤボンディング	良好	良好	不良	不良
表面粗さ	小	小	小	小
可撓性	良好	良好	良好	良好
加工性	良好	良好	良好	良好

【0035】実施例1、2の多層配線板は、130℃でのワイヤボンディング性に優れる他、可撓性、回路充填性に優れている。また、比較例1は、BET比表面積の小さい球型フィラーを使用しているため、130℃での

※ンディング性に優れる他、可撓性、回路充填性に優れている。

【図面の簡単な説明】

30 【図1】 (a)～(f)は、本発明の一実施例を説明するための各工程における断面図である。

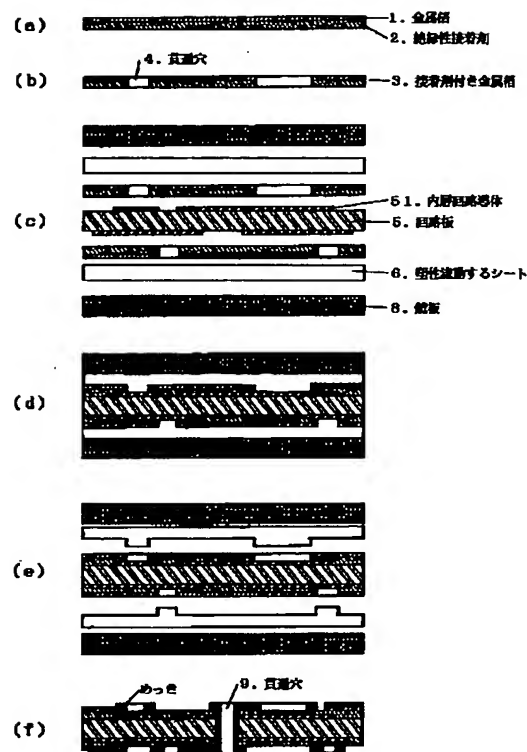
【符号の説明】

- | | |
|----------------|------------|
| 1. 金属箔 | 2. 絶縁性接着剤 |
| 3. 接着剤付き金属箔 | 4. 貫通穴 |
| 5. 内層回路板 | 51. 内層回路導体 |
| 6. 塑性流動するシート | 8. 鏡板 |
| 9. 貫通穴（スルーホール） | |

【0036】

【発明の効果】以上、説明したように、本発明の接着剤付き銅箔、接着シートを用いた多層配線板は、ワイヤボ※

【図1】



フロントページの続き

(51)Int. Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 J 7/02	J L E		C 0 9 J 7/02	J L E
163/00	J F P		163/00	J F P
H 0 5 K 3/46			H 0 5 K 3/46	T

(72)発明者 有家 茂晴
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 大塚 和久
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 山本 和徳
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 斑目 健
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 ▲つる▼ 義之
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 清水 浩
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 小川 信之
茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.